

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

25 H 71

25 H 62

25 H 51

## (10) 特 許 公 報

昭45-997

公告 昭和 45年(1970)1月13日

発明の数 1

(全 4 頁)

1

2

## ⑤ レジンアロイ

① 特 願 昭 41-51620

② 出 願 昭 41(1966)8月5日

優先権主張 ③ 1965年8月12日 ④ アメリカ 5  
カ国 ⑤ 479330⑦ 発 明 者 ロバート・ウィルトン・フィノ  
ルトアメリカ合衆国コネチカット州リ  
バーサイド市バルマー・テラス 6 10⑧ 出 願 人 ゼネラル・エレクトリック・コム  
パニーアメリカ合衆国ニューヨーク州  
12305・スケネクタデー・リ  
グアード 1

代 表 者 アントン・ゼイ・ウィル

代 理 人 弁理士 安達世般 外 1 名

## 発明の詳細な説明

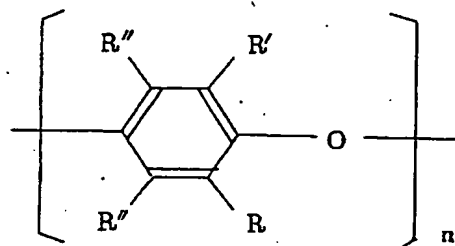
本発明は、ポリフェニレンオキサイドおよびポ  
リアミドよりなるポリマーアロイに関する。

ポリフェニレンオキサイド類は、-275°Fの  
脆性点から375°Fの加熱ひずみ温度に至る600  
°F以上の温度範囲にわたって独自の化学的、物理  
的、電気的特性の組み合わせを特徴とする新しい  
プラスチック体である。この特性の組み合わせの  
ためポリフェニレンオキサイド類は多くの産業上  
の用途に有用となつてゐるが、この重合体の流れ  
特性は優れておらず押出し操作中の種々の困難の  
原因となるので、その使用範囲はかなり限定され  
る。

ポリフェニレンオキサイドの流れ特性はポリフ  
エニレンオキサイドにポリアミドを添加すること  
によつて著しく改良しうることを見出した。この  
ことはポリアミドがポリフェニレンオキサイドに  
比較的不溶性であり、従つて可塑剤効果を与える  
ことが期待できなかったのが特に驚くべきことで  
ある。

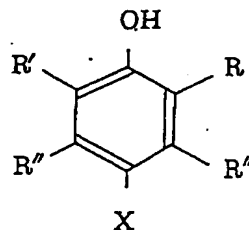
本発明の一目的は、優秀な流れ特性を有する新  
規な重合体配合物を提供するにある。

本発明の目的に従い、下記の一般式



(上式において、1単位の酸素原子は隣接する単  
位のベンゼン核に結合しており、nは少なくとも  
100の正の整数であり、Rは水素、炭化水素基、  
少なくとも2個の炭素原子を有するハロ炭化水素  
基、炭化水素オキシ基および少なくとも2個の炭  
素原子を有するハロ炭化水素オキシ基よりなる群  
より選択した一価置換基を示し、R'およびR''は  
Rと同じで更にハロゲンを示す)を有するポリフ  
エニレンオキサイドと、ポリアミドとのレジンア  
ロイが提供される。

これらのポリフェニレンオキサイドは、第一、  
第二または第三級アミンおよび第三級アミンに溶  
解し第二銅状態で存在できる第一または第二銅塩  
の存在下に、酸素を下記の構造式を有するフェノ  
ールと反応させることによつて製造できる。



上記の式において、Xは水素、塩素、臭素、沃  
素よりなる群から選ばれた置換基であり、R、R'  
およびR''は前述したとおりである。

特に興味のあるのは、2,6-ジメチルフェノ  
ールおよび2,6-ジフェニルフェノールから誘

導した重合体である。この他に興味のあるのは、  
2-メチル-6-エチルフェノールおよびO-ク  
レゾールから誘導した重合体である。

説明を簡潔にするため、本明細書で使用する  
「ポリフェニレンオキサイド」という用語は(フ  
エノールから製造された)、置換されないポリフ  
エニレンオキサイドのみでなく、種々の置換基  
(たとえば、上記においてR, R'およびR'' が表  
わすもの)により置換されたポリフェニレンオキ  
サイド類をも包含する。

本明細書で使用する「ポリアミド」という用語  
は、ジアミンと二塩基酸の縮合、ならびにアミノ  
酸の自己縮合により形成された重合体と、ラクタ  
ムの重合により形成された重合体とを包含する。  
本発明の目的に適するポリアミドは350°F以上  
の温度で溶融するポリアミドであり、好ましくは  
375°Fないし550°Fで溶融するポリアミドで  
ある。好ましいポリアミドとしては、ヘキサメチ  
レン-アジバミド、ポリカプロラクタム、ポリヘ  
キサメチレン-セバカミドおよびその共重合体が  
ある。

一般に、ポリフェニレンオキサイドの流れ特性  
は、全組成物の0.1ないし25重量%のポリアミ  
ドを添加することにより改良される。しかし、ポ  
リアミドの濃度が20%以上となると、他の物理  
特性がかなり失われ始めることが判つた。ポリア  
ミド濃度が1%より少なくなると、ポリフェニレ  
ンオキサイドの流れ特性はわずかしき改良されな  
い。従つて好ましい実施態様においては、ポリア  
ミドがポリマーアロイの1ないし20%を構成し、  
30 ポリフェニレンオキサイドが残余を構成する。

ポリアミドがポリフェニレンオキサイド中に均  
一に分散する限り、ポリフェニレンオキサイド中  
にポリアミドを分散するために使用する方法は重  
要な問題ではない。分散が不完全または不均一で  
35 あると大きな集合体が形成され、この集合体はポ  
リブレンドの物理特性を損う。ポリブレンドは、  
粒状または粉末状の2種の重合体を混合装置で混  
合し、その後成形または押出しを行うことにより  
形成される。別の便利な方法は、2種の重合体を  
40 これら重合体が相互に溶解する溶媒に溶解し、重  
合体を均質な混合物として共沈させるものである。

一般に、押出しにより混合物を形成する場合は、  
まず粒状または粉末状の2種の重合体を回転操作  
により混合する。微細な粉末が好ましいが、これ

は均質度を増大させるためである。重合体混合物  
は押出機のホッパーへ供給され、500ないし  
650°Fの温度でダイを通過する。分散を完全に  
するため、押出されたストランドをストランド切  
断機でベレット化し、同一の押出し条件で再び押  
出しを行うのが望ましい。

ポリアミドをポリフェニレンオキサイドに添加  
すると、後者の流れ特性はきわめて増大する。ポ  
リフェニレンオキサイド類の流れ特性を改良させ  
10 れば、筒、棒、管その他の輪郭の押出しができる。  
実施例に示した百分率はすべて重量による。

#### 実施例 1

重合体配合物のポリフェニレンオキサイド成分  
は、30°Cにおいてクロロホルム中で測定した  
15 固有粘度が約0.60 dl/gであるポリ- (2,  
6-ジメチル-1,4-フェニレン-オキサイド)  
であつた。ポリアミド成分は、イー・アイ・デ  
ン社製の「サイテル101」と称するポリヘキ  
サメチレン-アジバミドであつた。2種の重合体  
配合物と1種の対照試料を形成した。各配合物は  
それぞれ0.1%と1%のポリアミドを含有した。  
微細粉末状の各成分を混合し、約293°Cに維持  
した押出機にスクリー速度23.5 rpm で通し  
た。押出しダイは、幅0.15cmの2.5cmリボン  
ダイであつた。ダイに発生する圧力を測定するた  
め、ダイの直前に圧力計を配置した。下記の押出  
し圧が記録された。

第 I 表

ポリ- (2, 6-ジメチル-1, 4-フェニレン  
-オキサイド)-ポリヘキサメチレン-アジバミ  
ド配合物を押出すに要する圧力

組成 (重量% ポリアミド)	圧 力 (平均)
0	約 194 kg/cm <sup>2</sup> (2750 psi)
0.1	約 171 kg/cm <sup>2</sup> (2425 psi)
1.0	約 169 kg/cm <sup>2</sup> (2400 psi)

ポリアミド濃度が増大するに従い押出し圧は低  
下する。

このような低濃度においては、ポリフェニレン  
オキサイドの引張特性についてのポリアミドの影  
響は最少となる。

5

6

## 実施例 2

実施例 1 の装置と手順により、別に三つの試験を行つた。重合体配合物の各成分は、30℃においてクロロホルム中で測定した固有粘度、が約 0.60 dl/g であるポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレン-オキサイド)と、イ-

※アイ・デュポン社製の「ザイテル 211」と称するポリカプロラクタムとにより構成した。重合体配合物はそれぞれ、0%、10%、20%のポリアミドを含有した。押出し温度は約 290℃であり、スクリー速度は 23.5 rpm であつた。これにより得られた結果は次のとおりである。

第 II 表

ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレン-オキサイド)とポリカプロラクタムの配合物

組成 (重量%ポリアミド)	押出し圧(平均)	降伏強度	破断強度
0	約 194 kg/cm <sup>2</sup> (2750 psi)	約 685 kg/cm <sup>2</sup> (9800 psi)	約 521 kg/cm <sup>2</sup> (7400 psi)
10	約 70 kg/cm <sup>2</sup> (1000 psi)	約 584 kg/cm <sup>2</sup> (8300 psi)	約 584 kg/cm <sup>2</sup> (8300 psi)
20	約 42 kg/cm <sup>2</sup> (600 psi)	約 556 kg/cm <sup>2</sup> (7900 psi)	約 556 kg/cm <sup>2</sup> (7900 psi)

ポリアミドの濃度が増大すると、試料を押出すに要する圧力は急速に減少する。しかし、引張特性も低下し、ポリアミドの濃度が 20%以上となると、その引張特性は余りに低下して多くの用途

## 実施例 3

押出機のスクリー速度を 50 rpm に増加し、実施例 2 を反復した。ポリアミドを含有しない試料のダイ直前の圧力は、前回同様約 194 kg/cm<sup>2</sup> (2750 psi) であることが判つた。ポリアミドを 10% 含有する試料の圧力は約 144 kg/cm<sup>2</sup> (2050 psi) であり、ポリアミドを 20% 含有する試料の圧力は約 67 kg/cm<sup>2</sup> (950 psi) であつた。ポリアミドを含有するポリフェニレンオキサイドの流れ特性は実質的に改良されることが再び実証された。

## 実施例 4

粉末の代わりにペレットのポリアミドを使用し、実施例 2 を反復した。ポリアミドのペレットを 10% 含有する試料の押出し圧力は約 70 kg/cm<sup>2</sup> (1000 psi) であり、ポリアミドを 20% 含有する試料の押出し圧力は約 28 kg/cm<sup>2</sup> (400 psi) であつた。ポリアミドを含有しない対照試料の押出し圧は約 194 kg/cm<sup>2</sup> (2750 psi)

であつた。

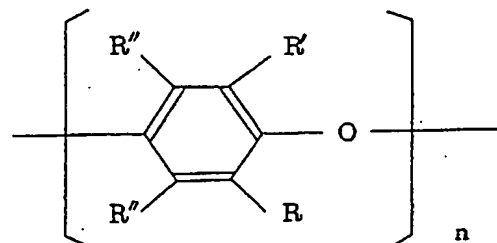
## 実施例 5

押出機スクリー速度を 50 rpm に増加し、実施例 4 を反復した。ポリアミドをそれぞれ 0%、10%、20% 含有する重合体配合物の押出し圧力は、おのおの約 194 kg/cm<sup>2</sup> (2750 psi)、約 134 kg/cm<sup>2</sup> (1900 psi)、約 53 kg/cm<sup>2</sup> (750 psi) であつた。

重合体配合物には、ポリスチレン、ポリオレフィン等の別の重合体をさらに含有させ得る。また、重合体配合物に可塑剤を添加し、流れ特性をさらに増大できる。上記組成物用の可塑剤としては、鉱油が特に適していることが判つた。

## 特許請求の範囲

## 1 一般式



(上式において、1 単位 of 酸素原子は隣接する単位のベンゼン核に結合しており、n は少なくとも

7

8

100の正の整数であり、Rは水素、炭化水素基、少なくとも2個の炭素原子を有するハロ炭化水素基、炭化水素オキシ基および少なくとも2個の炭素原子を有するハロ炭化水素オキシ基よりなる群

より選択した一価置換基を示し、R'およびR''はRと同じで更にハロゲンを示す)を有するポリフェニレンオキサイドとポリアミドからなるレジニアロイ。